

17.11.2004

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

REC'D 13 JAN 2005

WIPO PCT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日      2 0 0 3 年 1 2 月    3 日  
Date of Application:

出 願 番 号      特 願 2 0 0 3 - 4 0 4 7 2 1  
Application Number:  
[ST. 10/C]:      [J P 2 0 0 3 - 4 0 4 7 2 1]

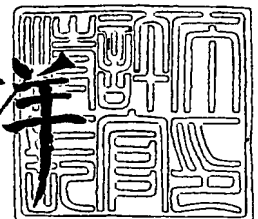
出    願    人      バ ン ド ー 化 学 株 式 有 限 公 司  
Applicant(s):

**PRIORITY  
DOCUMENT**  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2 0 0 4 年 1 2 月 2 4 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小 川



BEST AVAILABLE COPY

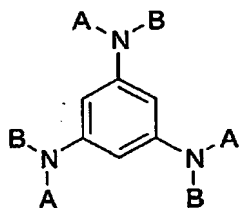
【書類名】 特許願  
【整理番号】 MAC-11103  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 C07C211/54  
【発明者】  
    【住所又は居所】 兵庫県神戸市兵庫区明和通3丁目2番15号 バンドー化学株式会社内  
    【氏名】 赤司 信隆  
【発明者】  
    【住所又は居所】 大阪府豊中市大黒町3丁目5番7号  
    【氏名】 城田 靖彦  
【特許出願人】  
    【識別番号】 000005061  
    【氏名又は名称】 バンドー化学株式会社  
【代理人】  
    【識別番号】 100079120  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 牧野 逸郎  
【先の出願に基づく優先権主張】  
    【出願番号】 特願2003-391882  
    【出願日】 平成15年11月21日  
【手数料の表示】  
    【予納台帳番号】 011914  
    【納付金額】 21,000円  
【提出物件の目録】  
    【物件名】 特許請求の範囲 1  
    【物件名】 明細書 1  
    【物件名】 図面 1  
    【物件名】 要約書 1

## 【書類名】 特許請求の範囲

## 【請求項 1】

一般式 (I)

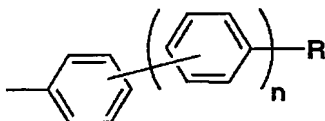
【化 1】



(I)

(式中、A 及び B は一般式 (II))

【化 2】



(II)

(式中、R は炭素原子数 1～6 のアルキル基又は炭素原子数 5 又は 6 のシクロアルキル基を示し、n は 0、1、2 又は 3 である。)

で表される基であり、同じであっても、異なってもよい。)

で表されるトリス (アリアルアミノ) ベンゼン類からなり、サイクリックボルタングラムにおいて、掃引速度 20 mV/秒での 50 回のサイクリック曲線のピークの電流のばらつきがピーク電流の平均値に対して ±10% 以内であることを特徴とする有機電子機能材料。

。

## 【請求項 2】

基 A が末端のフェニル基に炭素原子数 1～6 のアルキル基又は炭素原子数 5 又は 6 のシクロアルキル基を有するビフェニル基又はテルフェニル基であり、基 B が炭素原子数 1～6 のアルキル基又は炭素原子数 5 又は 6 のシクロアルキル基を有するフェニル基であるトリス (アリアルアミノ) ベンゼン類からなる請求項 1 に記載の有機電子機能材料。

## 【請求項 3】

トリス (アリアルアミノ) ベンゼン類が 1, 3, 5-トリス (N-(4'-メチル-4-ビフェニル)-N-(p-トリル) アミノ) ベンゼンである請求項 1 に記載の有機電子機能材料。

## 【請求項 4】

請求項 1 から 3 のいずれかに記載の有機電子機能材料からなる有機正孔輸送剤。

【書類名】明細書

【発明の名称】有機電子機能材料

【技術分野】

【0001】

本発明は有機電子機能材料に関し、詳しくは、特に、トリス（アリアルアミノ）ベンゼン類からなり、繰り返しの酸化還元の安定性にすぐれ、従って、例えば、有機正孔輸送剤として好適に用いることができる有機電子機能材料に関する。

【背景技術】

【0002】

近年、光・電子変換機能と可逆的な酸化還元機能を有し、それ自体でアモルファス膜を形成し得る有機化合物を電子機能材料、例えば、有機正孔輸送剤として用いた発光素子や半導体等の種々の電子デバイスが注目を集めている。このような有機化合物からなるアモルファス膜を得るには、ポリカーボネートのようなバインダー樹脂と当該有機化合物を有機溶剤に溶解し、塗布、乾燥して、アモルファス膜を形成する方法や（特許文献1参照）、また、それ自体でアモルファス膜を形成し得る所謂「スターバースト」分子と呼ばれる含窒素多核芳香族有機化合物の場合には、これをを基板上に蒸着させて、アモルファス膜を形成する方法等が知られている（特許文献2参照）。

【0003】

このような方法のうち、バインダー樹脂を用いる方法によれば、形成されたアモルファス膜において、当該有機化合物がバインダー樹脂によって希釈さされていると共に、その影響を受けるので、本来の電子機能材料の機能を十分に発揮することができない。また、バインダー樹脂の助けを借りて、常温で安定なアモルファス膜を形成できても、その低分子量有機化合物自体、ガラス転移温度が低く、耐熱性に劣り、アモルファス膜の安定性や寿命において問題がある。

【0004】

「スターバースト」分子と呼ばれる含窒素多核芳香族化合物は、その分子構造から三つの群、即ち、トリフェニルアミン骨格のもの（トリフェニルアミン類）、トリアミノベンゼン骨格のもの（トリアミノベンゼン類）及びトリフェニルベンゼン骨格のもの（トリフェニルベンゼン類）に大別される。

【0005】

トリフェニルアミン類としては、4, 4', 4''-トリス（N, N-ジフェニルアミノ）トリフェニルアミン（TDATA）や4, 4', 4''-トリス（N-フェニル-N-m-トリルアミノ）トリフェニルアミン（m-MTDATA）（特許文献3参照）が知られており、更に、4, 4', 4''-トリス（N-（2-ナフチル）-N-フェニルアミノ）トリフェニルアミン（2-TNATA）等も知られている（特許文献4）。これらのトリフェニルアミン類は、酸化還元が可逆的であり、アモルファス膜を蒸着法によって形成することができるが、TDATAやm-MTDATAは耐熱性に難があり、TNATAは110℃前後のガラス転移温度を有するので、耐熱性にはすぐれるものの、結晶化しやすいので、アモルファス膜の安定性に問題がある。

【0006】

トリフェニルベンゼン類としては、1, 3, 5-トリス（4-N, N-ジフェニルアミノフェニル）ベンゼン（TDAPB）や1, 3, 5-トリス（4-（N-トリル-N-フェニルアミノフェニル）ベンゼン（MTDAPB）が知られている（非特許文献1参照）。これらトリフェニルベンゼン類は、アモルファス膜を形成し、0.6～0.7Vの酸化電位を有するが、酸化還元が不可逆であるので、有機正孔輸送剤のような電子機能材料としての実用性に乏しい。他方、トリアミノベンゼン類としては、1, 3, 5-トリス（N-メチルフェニル-N-フェニルアミノ）ベンゼン（MTDAB）が知られている。これらの酸化電位は0.6～0.7Vであるが、酸化還元が不可逆であるので、同様に、有機電子機能材料としての実用性に乏しい。

【0007】

更に、本発明者らは、酸化還元が可逆的であり、酸化電位が0.5～0.7Vの範囲にあり、耐熱性にすぐれ、蒸着によりアモルファス膜を形成できる有機化合物として、1,3,5-トリス(N-(p-メチルフェニル)-N-(1-ナフチル)アミノベンゼン(p-MTPNAB)や1,3,5-トリス(N-(p-メチルフェニル)-N-(4-ビフェニル)アミノ)ベンゼン(p-MTPBAB)(特願2003-079441)を提案している。

【0008】

これらのp-MTPNABやp-MTPBABは、酸化還元が可逆的であって、酸化電位も高く、ガラス転移点もそれぞれ87℃及び98℃と高いが、酸化還元を繰り返したときに、酸化曲線のピークにおける電流が低下する傾向があるので、有機電子機能材料としての性能の安定性や耐久性が十分でない虞がある。

【特許文献1】特開平11-174707号公報

【特許文献2】特開平08-291115号公報

【特許文献3】特開平01-224353号公報

【特許文献4】特開平08-291115号公報

【非特許文献1】「バンドー・テクニカル・レポート」、第2号、第9～18頁(1998年)

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

本発明は、有機電子機能材料における上述した問題を解決するためになされたものであって、光・電子変換機能を有し、酸化還元が可逆的であって、それ自体でアモルファス膜を形成することができ、ガラス転移温度が高いうえに、繰返しの酸化還元においても、ピーク電流値の変化が少なく、従って、安定性にすぐれた有機電子機能材料を提供することを目的とする。このような有機電子機能材料は、例えば、有機正孔輸送剤として好適に用いることができる。

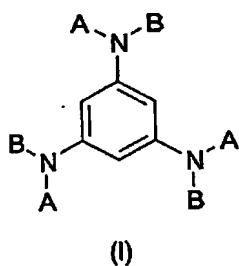
【課題を解決するための手段】

【0010】

本発明によれば、一般式(I)

【0011】

【化1】

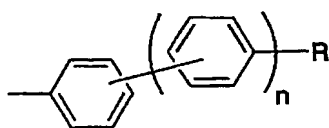


【0012】

(式中、A及びBは一般式(II))

【0013】

## 【化2】



(II)

## 【0014】

(式中、Rは炭素原子数1～6のアルキル基又は炭素原子数5又は6のシクロアルキル基を示し、nは0、1、2又は3である。)

で表される基であり、同じであっても、異なってもよい。)

で表されるトリス(アリールアミノ)ベンゼン類からなり、サイクリックボルタングラムにおいて、掃引速度20mV/秒での50回のサイクリック曲線のピークの電流のばらつきがピーク電流の平均値に対して±10%以内であることを特徴とする有機電子機能材料が提供される。

## 【発明の効果】

## 【0015】

本発明による有機電子機能材料は、上記一般式(I)で表されるトリス(アリールアミノ)ベンゼン類からなり、可逆的な酸化還元性を有し、酸化電位が高く、ガラス転移点が高く、しかも、蒸着等によって、それ自体で常温で安定なアモルファス膜を形成するうえに、特に、繰返しの酸化還元においても、ピーク電流の変化が少ないので、初期性能を長く維持することができ、かくして、種々の電子デバイスにおいて、有機正孔輸送剤のような有機電子機能材料として好適に用いることができる。

## 【0016】

特に、本発明による上記トリス(アリールアミノ)ベンゼン類からなる有機電子機能材料は、酸化還元の可逆性を示すサイクリックボルタングラムの50回繰返し酸化還元におけるピーク電流が50回の最大と最小の平均値に対し、±10%以内にあり、好ましい態様によれば、±5%以内である。

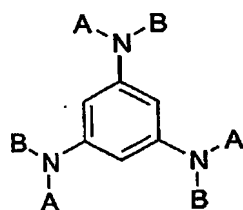
## 【発明を実施するための最良の形態】

## 【0017】

本発明による有機電子機能材料は、一般式(I)

## 【0018】

## 【化3】



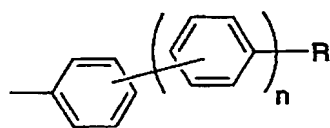
(I)

## 【0019】

(式中、A及びBは一般式(II)

## 【0020】

## 【化 4】



(III)

## 【0021】

(式中、Rは炭素原子数1～6のアルキル基又は炭素原子数5又は6のシクロアルキル基を示し、nは0、1、2又は3である。)

で表される基であり、同じであっても、異なってもよい。)

で表されるトリス(アリールアミノ)ベンゼン類からなる。

## 【0022】

従って、上記一般式(I)で表されるトリス(アリールアミノ)ベンゼン類において、基A及びBは上記アルキル基又はシクロアルキル基を有するフェニル基、末端のフェニル基に上記アルキル基又はシクロアルキル基を有するビフェニル基、末端のフェニル基に上記アルキル基又はシクロアルキル基を有するテル(ter)フェニル基又は末端のフェニル基に上記アルキル基又はシクロアルキル基を有するクアテル(quater)フェニル基であって、基A及びBは相互に同じであってもよく、また、相互に異なってもよい。

## 【0023】

特に、本発明によれば、上記一般式(I)で表されるトリス(アリールアミノ)ベンゼン類は、基Aが末端のフェニル基のパラ位に上記アルキル基又はシクロアルキル基を有するビフェニル基であり、基Bがパラ位に上記アルキル基又はシクロアルキル基を有するフェニル基であるものが好ましく、このようなトリス(アリールアミノ)ベンゼン類からなる有機電子機能材料は、酸化還元可逆性、酸化電位及び耐熱性の点でバランスにすぐれている。

## 【0024】

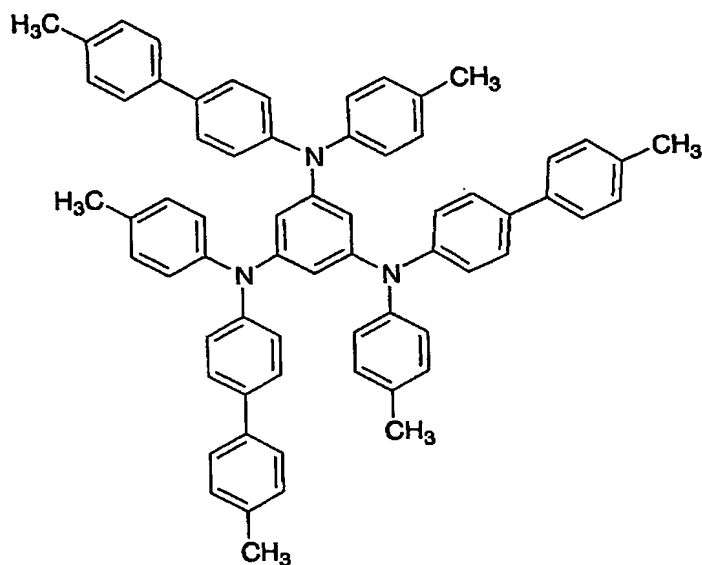
本発明において、上記アルキル基は、例えば、メチル、プロピル、ブチル、ペンチル又はヘキシル基であり、直鎖状でも分岐鎖状でもよい。また、シクロアルキル基はシクロペンチル又はシクロヘキシル基である。

## 【0025】

このようなトリス(アリールアミノ)ベンゼン類のなかでも、本発明によれば、次式

## 【0026】

## 【化5】



(III)

## 【0027】

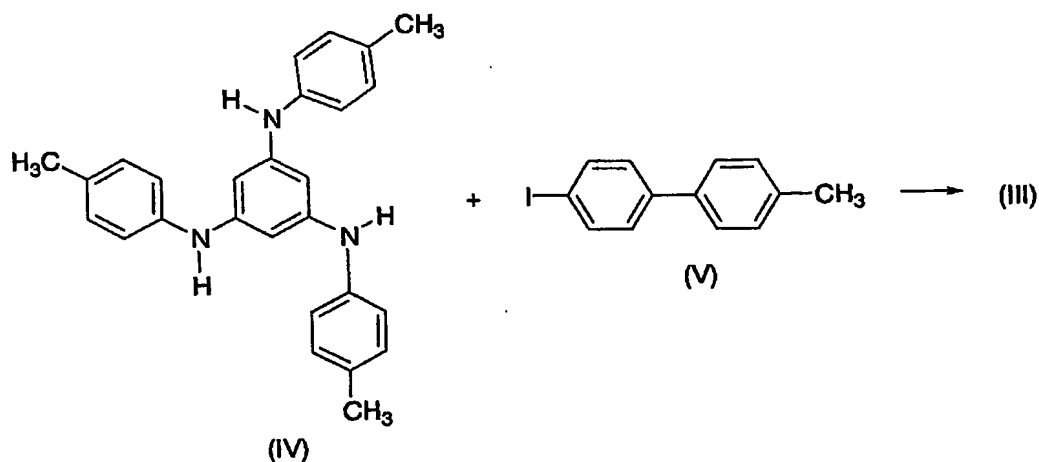
で表される 1, 3, 5-トリス (N-(4'-メチル-4-ビフェニリル) -N-(p-トリル) アミノ) ベンゼンからなる有機電子機能材料が繰り返しの酸化還元に対する安定性にすぐれているので、種々の電子デバイスにおいて、有機正孔輸送剤として好適に用いることができる。

## 【0028】

このような 1, 3, 5-トリス (N-(4'-メチル-4-ビフェニリル) -N-(p-トリル) アミノ) ベンゼンは、次のスキーム

## 【0029】

## 【化6】



## 【0030】

に示すように、例えば、1, 3, 5-トリス (p-トリル) アミノベンゼン (IV) と 4-ヨード-4'-メチルビフェニルとを反応させることによって得ることができる。

## 【0031】



本発明による有機電子機能材料は、このように、トリス（アリアルアミノ）ベンゼン類において、それぞれのアリアルアミノ基におけるそれぞれのアリアル基の末端の化学的な活性点、好ましくは、フェニル基のパラ位の炭素原子を上記アルキル基又はシクロアルキル等のような安定な置換基で置換し、いわば、キャップすることによって、「スターバースト」分子の一つであるトリス（アリアルアミノ）ベンゼン類の酸化還元性、高い酸化電位、高いガラス転移点を確保したうえに、繰返しの酸化還元に耐久性を付与し、かくして、繰返しの酸化還元において、ピーク電流の変化を少なくすることに成功したものであり、種々の電子デバイスにおいて、安定で耐久性のある有機電子機能材料として好適に用いることができる。

#### 【実施例】

##### 【0032】

以下に実施例を挙げて本発明を説明するが、本発明はこれら実施例により何ら限定されるものではない。

##### 【0033】

#### 実施例1

##### （1, 3, 5-トリス（p-トリル）アミノベンゼンの調製）

フロログルシノール11.8g、p-トリルイジン50g及びヨウ素0.5gを300mL容量三口フラスコに仕込み、窒素雰囲気下に150℃で加熱攪拌して反応させた。反応終了後、得られた反応混合物をメタノール、ヘキサン、メタノールの順で洗浄し、乾燥させて、やや赤みがかった固体として、目的とする1, 3, 5-トリス（p-トリル）アミノベンゼン31.9gを得た。収率は86.5%であった。

##### 【0034】

（1, 3, 5-トリス（N-（4'-メチル-4-ビフェニル）-N-（p-トリル）アミノ）ベンゼン（p-MBTAB）の調製）

1, 3, 5-トリス（p-トリル）アミノベンゼン2.0g、4-ヨード-4'-メチルビフェニル7.0g、炭酸カリウム6.9g、銅粉1g及び18-クラウン-6（1, 4, 7, 10, 13, 16-ヘキサオキサシクロオクタデカン）0.7gを反応溶剤メシチレン15mLと共に100mL容量ガラスフラスコに仕込み、窒素雰囲気下に170℃で15時間反応させた。反応終了後、得られた反応混合物をトルエン抽出し、このトルエン溶液をシリカゲルクロマトグラフィーに付して、反応生成物を分取した。この反応生成物を再結晶で精製した後、昇華精製して、目的とする1, 3, 5-トリス（N-（4'-メチル-4-ビフェニル）-N-（p-トリル）アミノ）ベンゼン（p-MBTAB）を得た。収率は15.6%であった。

##### 【0035】

元素分析値（%）：

	C	H	N
計算値	88.89	6.40	4.71
測定値	88.69	6.55	4.76

##### 【0036】

質量分析：892（M<sup>+</sup>）

示差走査熱量測定（DSC）

試料として、p-MBTAB約5mgを秤量し、示差走査熱量測定装置中で一度融解させた後、50℃/分の速度で室温まで冷却したが、試料は結晶化せず、アモルファスなガラス状となった。次に、アルミニウム板を参照として、昇温速度5℃/分で熱特性を測定した。DSCチャートを図1に示すように、ガラス転移点（T<sub>g</sub>）は103.4℃、結晶化温度（T<sub>c</sub>）は138.7℃と180.1℃であった。

##### 【0037】

サイクリックボルタンメトリー（CV）：

p-MBTABをジクロロメタンに溶解させて、10<sup>-3</sup>M濃度に調整した。支持電解質として（n-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>）<sub>4</sub>NC1O<sub>4</sub>（0.1M）を用い、参照電極としてAg/Ag<sup>+</sup>を用

いて、スキャン速度20 mV/秒にて酸化還元特性を測定した。図2に示すように、酸化曲線のピーク電位と還元曲線のピーク電位の平均値として定義される酸化電位は0.49 V (vs Ag/Ag<sup>+</sup>)であり、50回の繰返し測定において、酸化還元に可逆性を有し、しかも、酸化曲線ピーク電流の平均値が $2.565 \times 10^{-6}$  A、最大値が $2.596 \times 10^{-6}$  A、最小値が $2.533 \times 10^{-6}$  Aであり、平均値に対する変化は僅かに±1.21%で安定しており、繰返し酸化還元による性能低下が極めて少ないことが確認された。

#### 【0038】

##### 比較例1

(1, 3, 5-トリス(1-ナフチル)アミノベンゼンの調製)

フロログシノール4.4 g、1-ナフチルアミン25 g及びヨウ素0.5 gを100 mL容量三つ口フラスコに仕込み、窒素雰囲気下に140℃で4時間加熱攪拌して、反応させた。反応終了後、得られた反応混合物をメタノール、ヘキサン、メタノールの順で洗浄し、乾燥させて、やや赤みがかかった固体として、目的とする1, 3, 5-トリス(1-ナフチル)アミノベンゼン4.4 gを得た。収率は25%であった。

#### 【0039】

(1, 3, 5-トリス(N-(4-ビフェニル)-N-(1-ナフチル)アミノ)ベンゼン(TBNAB)の調製)

1, 3, 5-トリス(1-ナフチル)アミノベンゼン2.0 g、4-ヨードビフェニル5.0 g、炭酸カリウム3.7 g、銅粉2 g及び18-クラウン-6(1, 4, 7, 10, 13, 16-ヘキサオキサシクロオクタデカン)0.3 gを反応溶剤メシチレン10 mLと共に100 mL容量ガラスフラスコに仕込み、窒素雰囲気下に170℃で17時間反応させた。反応終了後、得られた反応混合物をトルエン抽出し、このトルエン溶液をシリカゲルクロマトグラフィーに付して、反応生成物を分取した。この反応生成物をトルエン/ヘキサン混合溶媒から再結晶、乾燥し、更に、昇華精製して、目的とする1, 3, 5-トリス(N-(4-ビフェニル)-N-(1-ナフチル)アミノ)ベンゼン(TBNAB) 1.2 gを得た。収率は32%であった。

#### 【0040】

元素分析値(%) :

	C	H	N
計算値	90.25	5.36	4.39
測定値	89.96	5.44	4.32

#### 【0041】

質量分析: 957 (M<sup>+</sup>)

示差走査熱量測定(DSC)

試料として、TBNAB約5 mgを秤量し、示差走査熱量測定装置中で一度融解させた後、50℃/分の速度で室温まで冷却したが、試料は結晶化せず、アモルファスなガラス状となった。次に、アルミニウム板を参照として、昇温速度5℃/分で熱特性を測定した。DSCチャートを図3に示すように、ガラス転移点(T<sub>g</sub>)は130℃、結晶化温度(T<sub>c</sub>)は204℃、融点(T<sub>m</sub>)は271℃であった。

#### 【0042】

サイクリックボルタンメトリー(CV) :

TBNABをジクロロメタンに溶解させて、実施例1と同様にして、酸化還元特性を測定した。図4に示すように、酸化電位は0.6 V (vs Ag/Ag<sup>+</sup>)であり、50回の繰返し測定において、酸化還元に可逆性を有するが、酸化曲線ピーク電流の平均値が $4.257 \times 10^{-4}$  A、最大値が $4.687 \times 10^{-4}$  A、最小値が $3.816 \times 10^{-4}$  Aであって、平均値に対する変化は±10.1%と大きいものであった。

【産業上の利用可能性】

#### 【0043】

本発明による有機電子機能材料は、それ自体で安定なアモルファス膜を形成し、0.5

～0.7Vの範囲の酸化電位を有し、ガラス転移温度が高いうえに、繰返しの酸化還元  
の安定性にすぐれており、従って、半導体、表示素子等の種々の電子デバイスにおいて、正  
孔輸送剤のような有機電子機能材料として好適に用いることができる。

【図面の簡単な説明】

【0044】

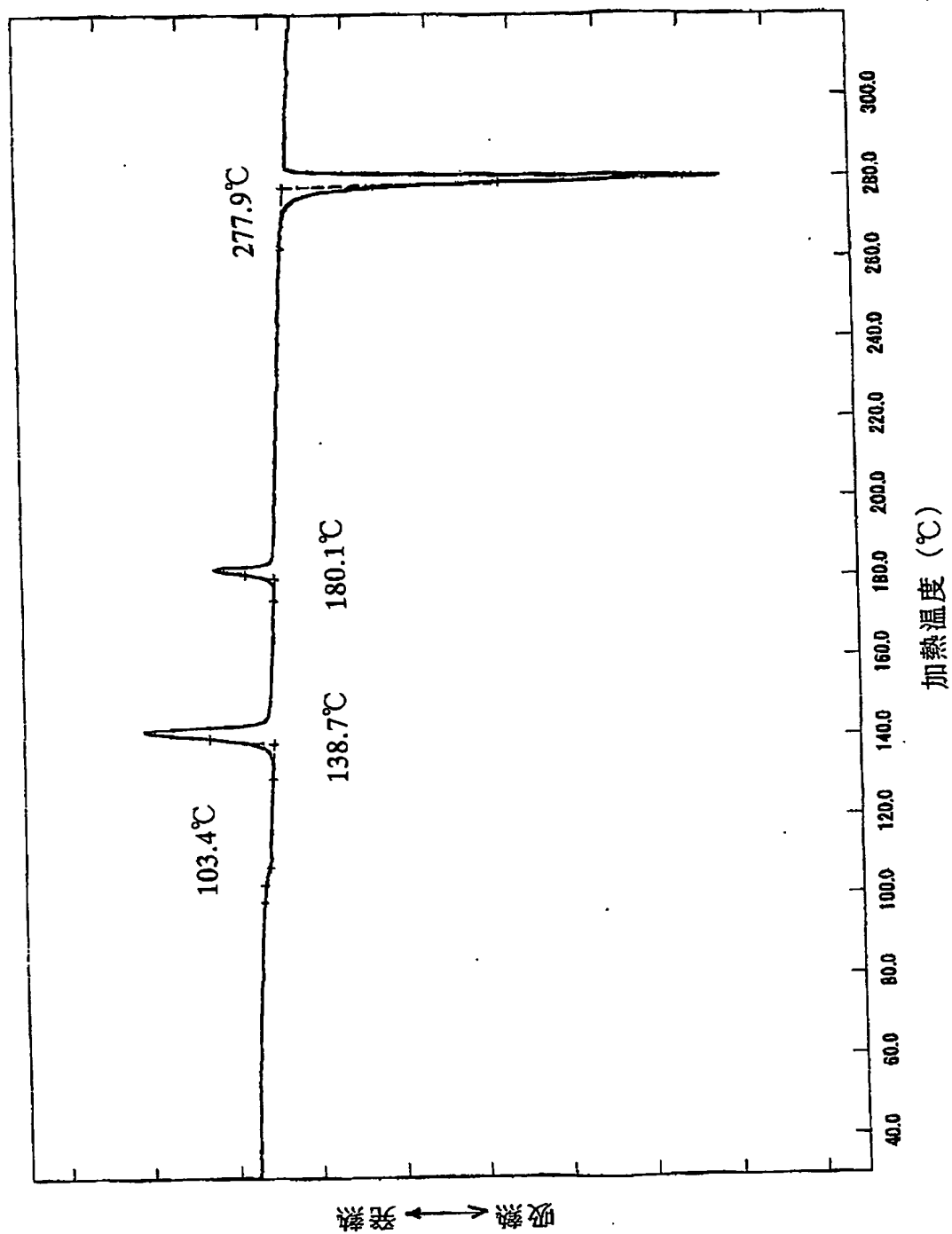
【図1】本発明の有機電子機能材料である1, 3, 5-トリス(N-(4'-メチル  
-4-ビフェニル)-N-(p-トリル)アミノ)ベンゼン(p-MBTAB)の  
示差走査熱量測定(DSC)曲線である。

【図2】本発明の有機電子機能材料である1, 3, 5-トリス(N-(4'-メチル  
-4-ビフェニル)-N-(p-トリル)アミノ)ベンゼン(p-MBTAB)サ  
イクリックボルタングラムである。

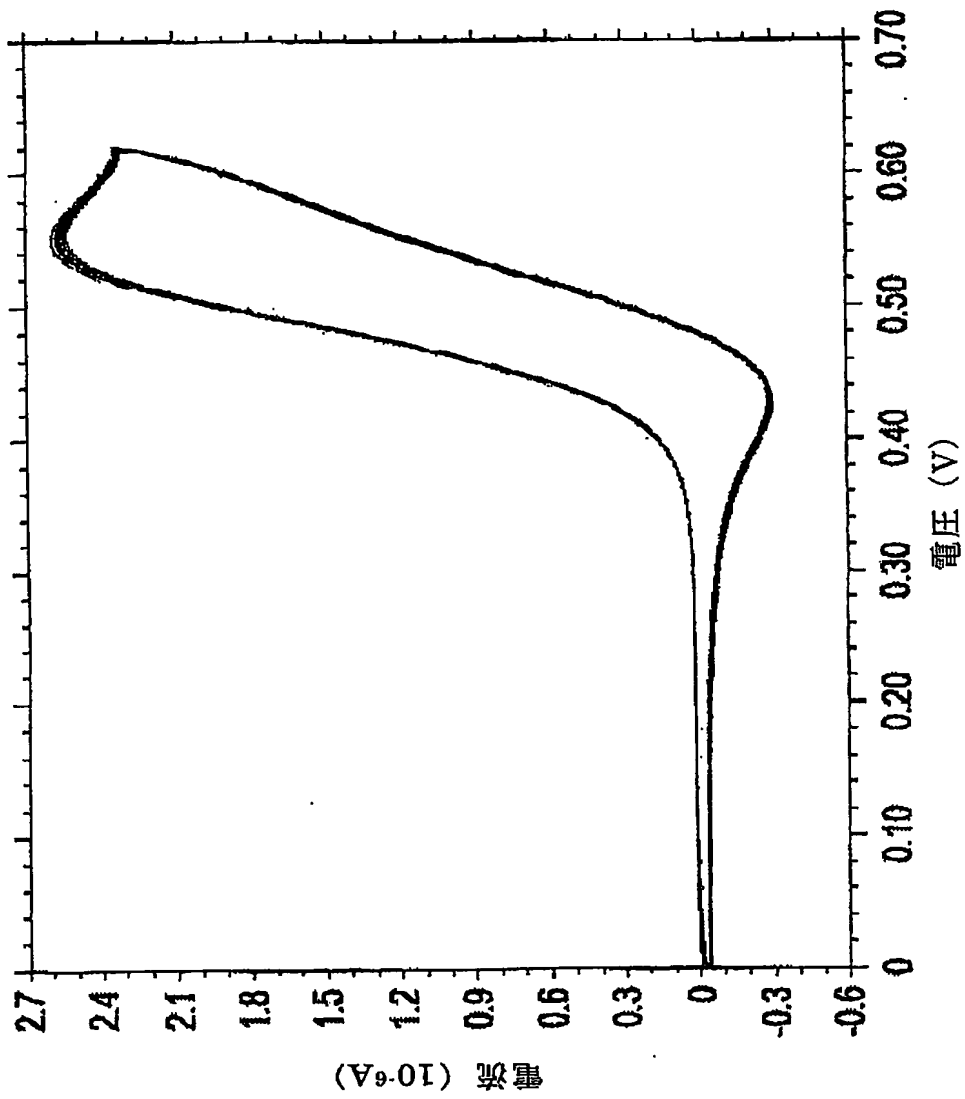
【図3】比較例としての有機電子機能材料である1, 3, 5-トリス(N-(4-ビ  
フェニル)-N-(1-ナフチル)アミノ)ベンゼン(TBNAB)の示差走査熱  
量測定(DSC)曲線である。

【図4】比較例としての有機電子機能材料である1, 3, 5-トリス(N-(4-ビ  
フェニル)-N-(1-ナフチル)アミノ)ベンゼン(TBNAB)のサイクリッ  
クボルタングラムである。

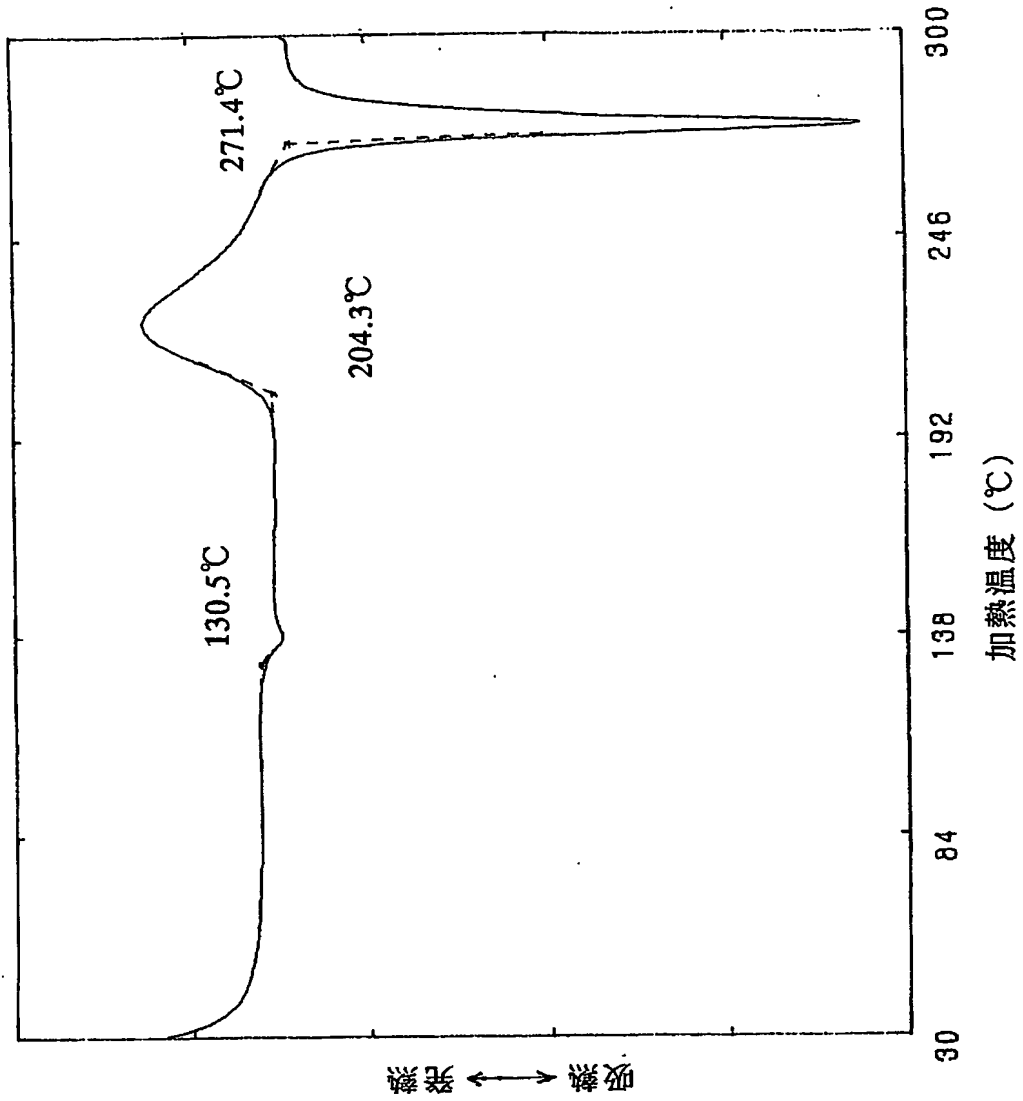
【書類名】 図面  
【図 1】



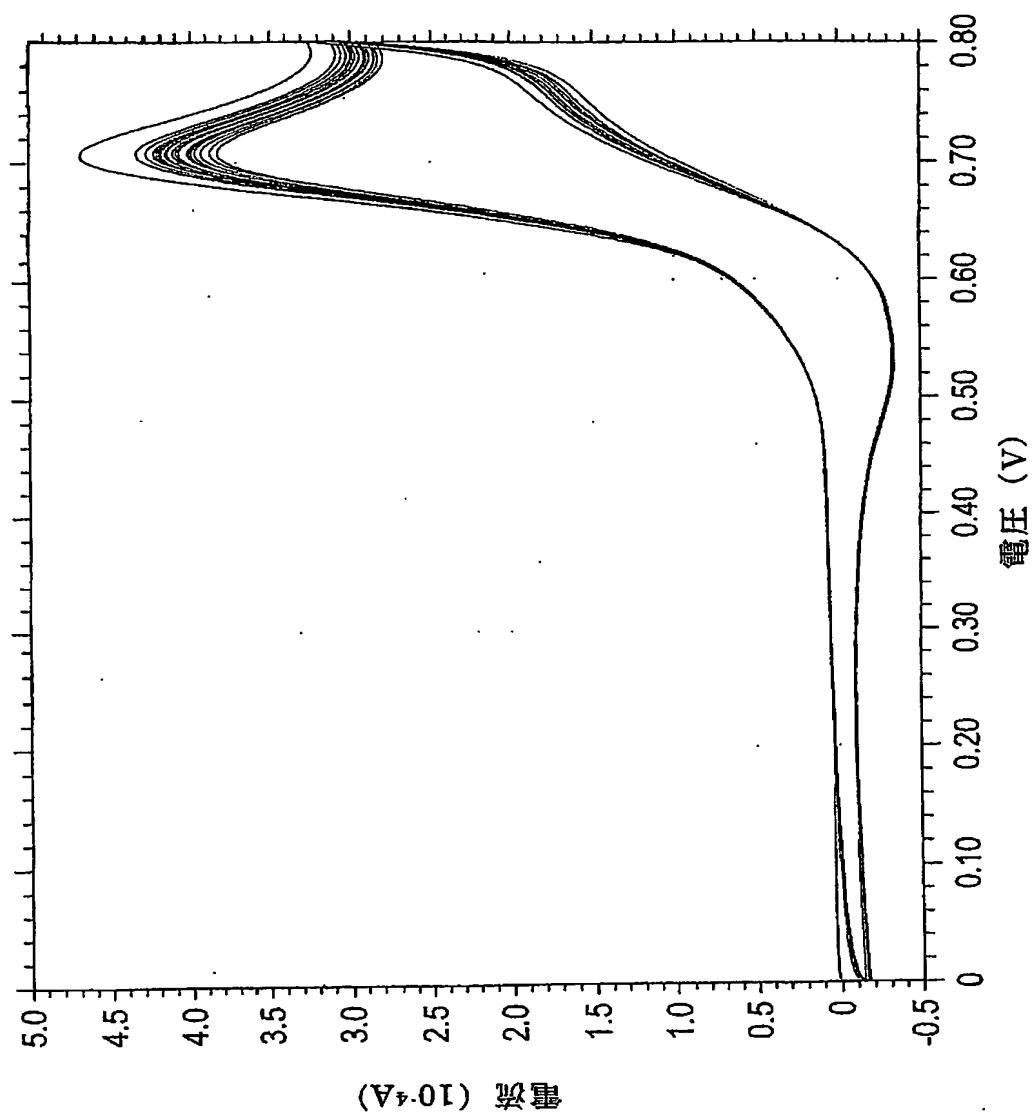
【図 2】



【図 3】



【図 4】



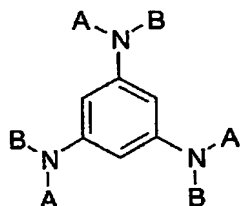
## 【書類名】要約書

## 【要約】

【課題】 ガラス転移温度が高く、繰返しの酸化還元の安定性にすぐれており、しかも、それ自体で安定なアモルファス膜を形成し、従って、例えば、有機正孔輸送剤として好適に用いることができる有機電子機能材料を提供する。

【解決手段】 一般式 (I)

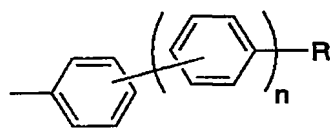
【化 1】



(I)

(式中、A 及び B は一般式 (II))

【化 2】



(II)

(式中、R は炭素原子数 1～6 のアルキル基又は炭素原子数 5 又は 6 のシクロアルキル基を示し、n は 0、1、2 又は 3 である。)

で表される基であり、同じであっても、異なってもよい。)

で表されるトリス (アリアルアミノ) ベンゼン類からなり、サイクリックボルタングラムにおいて、掃引速度 20 mV/秒での 50 回のサイクリック曲線のピークの電流のばらつきがピーク電流の平均値に対して ±10% 以内であることを特徴とする有機電子機能材料。



認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2003-404721
受付番号	50301995223
書類名	特許願
担当官	岩谷 貴志郎 7746
作成日	平成16年 3月 8日

<認定情報・付加情報>

【提出日】 平成15年12月 3日

特願 2 0 0 3 - 4 0 4 7 2 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 0 0 0 0 5 0 6 1 ]

1. 変更年月日 1 9 9 9 年 1 1 月 8 日

[変更理由]

住所変更

住 所

兵庫県神戸市兵庫区明和通 3 丁目 2 番 1 5 号

氏 名

バンドー化学株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☒ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☒ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☒ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**